



B4S

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **63144246 A**(43) Date of publication of application: **18.06.88**

(51) Int. Cl.

**G01N 27/30**  
**G01N 27/46**(21) Application number: **61291814**(22) Date of filing: **08.12.86**(71) Applicant: **MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD**(72) Inventor:  
**SUGIHARA HIROKAZU**  
**KOBAYASHI SHIGEO**  
**NANKAI SHIRO**  
**MORIGAKI KENICHI**  
**SUETSUGU SACHIKO**  
**KOMATSU KIYOMI**(54) **BIOSENSOR**

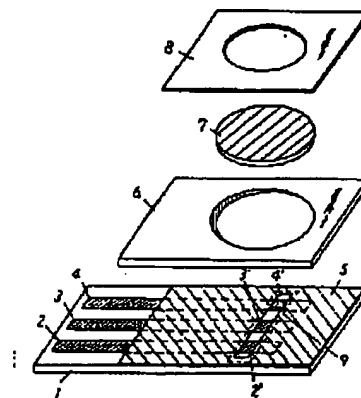
porous body 7 is adhered to unit the whole body.

(57) Abstract:

COPYRIGHT: (C)1988,JPO&amp;Japio

**PURPOSE:** To speedily and easily determine a specific component in a bio-sample by uniting an insulating substrate, electrode systems, and a porous body and performing a microwave plasma treatment previously for at least the measurement electrode surfaces of the electrode systems.

**CONSTITUTION:** Conductive carbon paste is printed on the insulating substrate 1 by screen printing, and heated and dried to form an electrode system of a counter electrode 2, a measurement electrode 3, and a reference electrode 4. Then, the electrode system is covered partially except electrodes 2'W4' which operate electrochemically by printing insulating paste, which is heat-treated to form an insulating layer 5. Then, only the electrode systems 2'W4' are exposed by masking and then a microwave electric discharging plasma treatment is carried out by using dry air to increase hydrophilic property. Then, a holed holding frame 6 made of resin is adhered to the insulating layer 5 and the porous body 7 is held in the hole so that the electrode systems 2'W4' are covered. Further, a cover 8 which is made of resin and has an opening part with a diameter smaller than the



## ⑫ 公開特許公報(A)

昭63-144246

⑤ Int.Cl.<sup>4</sup>G 01 N 27/30  
27/46

識別記号

庁内整理番号

J-7363-2G  
M-7363-2G

④ 公開 昭和63年(1988)6月16日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 バイオセンサ

⑯ 特 願 昭61-291814

⑰ 出 願 昭61(1986)12月8日

⑱ 発 明 者	杉 原	宏 和	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	小 林	茂 雄	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	南 海	史 朗	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	森 垣	健 一	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	末 次	佐 知 子	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	小 松	き よ み	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑲ 出 願 人	松下電器産業株式会社			大阪府門真市大字門真1006番地
⑳ 代 理 人	弁理士 中尾 敏男			外1名

## 明 細 書

## 1、発明の名称

バイオセンサ

## 2、特許請求の範囲

- (1) 少なくとも測定極と対極からなる電極系を設けた絶縁性の基盤を備え、酵素と電子受容体と試料液の反応に際しての物質濃度変化を電気化学的に前記電極系で検知し、前記試料液の基質濃度を測定するバイオセンサにおいて、前記電極系の少なくとも測定極の表面にあらかじめマイクロ波放電プラズマ処理を施し、更に酸化還元酵素、及び電子受容体を担持した多孔体とともに一体化したことを特徴とするバイオセンサ。
- (2) 電極系が、測定極、対極及び参照極から構成される特許請求の範囲第1項記載のバイオセンサ。
- (3) 電極系が、絶縁性の基板上にスクリーン印刷で形成されたカーボンを主体とする材料からなる特許請求の範囲第1項または第2項記載のバイオセンサ。

## 3、発明の詳細な説明

## 産業上の利用分野

本発明は、種々の微量の生体試料中の特定成分について、試料液を希釈することなく迅速かつ簡易に定量することのできるバイオセンサに関する。

## 従来の技術

従来、血液などの生体試料中の特定成分について、試料液の希釈や攪拌などの操作を行うことなく高精度に定量する方式としては、第5図に示す様なバイオセンサが提案されている(例えば、特開昭59-168852)。このバイオセンサは、絶縁基板10にリード13、14をそれぞれ有する白金などからなる測定極11および対極12を埋設し、これらの電極系の露出部分を酸化還元酵素および電子受容体を担持した多孔体15で覆ったものである。試料液を多孔体上へ滴下すると、試料液に多孔体中の酸化還元酵素と電子受容体が溶解し、試料液中の基質との間で酵素反応が進行し電子受容体が還元される。酵素反応終了後、この還元された電子受容体を電気化学的に酸化し、

このとき得られる酸化電流値から試料液中の基質濃度を求める。

#### 発明が解決しようとする問題点

この様な従来の構成では、多孔体については、測定毎に取り替えることにより簡易に測定に供することができるが、電極系については洗浄等の操作が必要である。一方電極系をも含めて測定毎の使い棄てが可能となれば、測定操作上、極めて簡易になるものの、白金等の電極材料や構成等の面から、非常に高価なものにならざるを得ない。

本発明はこれらの点について種々検討の結果、電極系と多孔体を一体化することにより、生体試料中の特定成分を極めて容易に迅速かつ高精度に定量することのできる安価なディスプレイタイプのバイオセンサを提供するものである。

#### 問題点を解決するための手段

本発明は上記問題点を解決するため、絶縁性の基板に少なくとも測定極と対極からなる電極系を設け、酵素と電子受容体と試料液を反応させ、前記反応に際しての物質濃度変化を電気化学的に前

記電極系で検知し、試料液中の基質濃度を測定するバイオセンサにおいて、酸化還元酵素および電子受容体を担持した多孔体で前記電極系を覆い、前記電極系および前記基板とともに一体化したものであり、前記電極系の少くとも測定極の表面に、あらかじめマイクロ波放電プラズマ処理を施すことにより親水性を高め、試料液を確実に測定極上に導くことにより、予想される試料液量の不足による測定のはらつきを防止するものである。

#### 作用

本発明によれば、電極系をも含めたディスプレイタイプのバイオセンサを構成することができ、試料液を多孔体に添加することにより、極めて容易に基質濃度を測定することができる。

しかも、電極系の少くとも測定極の表面に、あらかじめマイクロ波プラズマ処理を施すことにより親水性を高め、試料液を確実に測定極上に導くことができ、精度の良い測定が可能となった。

#### 実施例

以下、本発明の一実施例について説明する。

バイオセンサの一例として、グルコースセンサについて説明する。第1図は、グルコースセンサの一実施例について示したもので、構成部分の分解図である。ポリエチレンテレフタレートからなる絶縁性の基板1に、スクリーン印刷により導電性カーボンペーストを印刷し、加熱乾燥することにより、対極2、測定極3、参照極4からなる電極系を形成する。次に、電極系を部分的に覆い、各々の電極の電気化学的に作用する部分となる2'、3'、4' (各1mm)を残すように、絶縁性ペーストを前記同様印刷し、加熱処理して絶縁層5を形成する。

マスキングにより、上記電極系(2'、3'、4')のみが露出するようにした後、乾燥空気を用いて1~2 torr, 100ml/分の条件下で、2分間のマイクロ波放電プラズマ処理を施す。

次に、穴を開けた樹脂性の保持枠6を絶縁層5に接着し、前記電極系2'、3'、4'を覆うように多孔体7を穴の中に保持する。更に多孔体より小さい径の開孔部を有する樹脂性カバー8を接着し、

全体を一体化する。この一体化されたバイオセンサについて、測定極3に沿った断面図を第2図に示す。上記に用いた多孔体7は、酸化還元酵素としてグルコースオキシダーゼ200mg及び電子受容体としてフェリシアン化カリウム400mgをPH 6.6のリン酸緩衝液1mlに溶解した液をナイロン不織布に含浸後、減圧乾燥して作成したものである。

上記の様に構成したグルコースセンサの多孔体へ試料液としてグルコース標準液を滴下し、滴下2分後に、参照極を基準にして測定極に対してアノード方向へ700mV 10秒のパルス電圧を加え、一定時間後(例えば10秒後)の酸化電流値を測定した。この場合、添加されたグルコースは多孔体に担持されたグルコースオキシダーゼの作用でフェリシアン化カリウムと反応してフェロシアン化カリウムを生成する。そこで、上記の如くアノード方向のパルス電圧を加えたことにより生成したフェロシアン化カリウム濃度に基づく酸化電流が得られ、この電流値は基質であるグルコー

ス濃度に対応する。

上記のグルコースセンサに90mg/dlのグルコース標準液を滴下し、2分後に700mV、10秒のパルスを加え、パルス発生後10秒たった時点での電流値を標本数10個で測定した結果は、第3図Aに示すように非常に再現性の良いものであった。第3図Bは電極系2', 3', 4'の表面にマイクロ波放電プラズマ処理を施さず、他は上記と同様の構成をとったグルコースセンサに対し、標本数10個で、上記と同様の測定をおこなったものである。図から明らかなようにAに比べてばらつきが大きい。

応答値が低いものに関しては、電極系上に供給された試料液量が少なく、測定極の全面が濡れていないことが分解の結果確認された。

また、第4図Cには、電極系表面にマイクロ波放電プラズマ処理を施した本実施例の構成を持つグルコースセンサに対し、グルコース標準液を滴下した場合に電極系が濡れるまでに要した時間を電極間の抵抗を測定することによって測った結果

ト等からなる多孔体を単独、あるいは組み合わせで用いることができる。さらに酸化還元酵素と電子受容体の組み合わせも前記実施例に限定されることはなく、本発明の主旨に合致するものであれば用いることができる。一方、上記実施例においては、電極系として3電極方式の場合について述べたが、対極と測定極からなる2電極方式でも測定は可能である。

#### 発明の効果

本発明のバイオセンサは、絶縁性の基板、電極系および酸化還元酵素と電子受容体を担持した多孔体を一体化することにより、極めて容易に生体試料中の基質濃度を測定できる。更に、電極系表面にマイクロ波放電プラズマ処理を施すことによって測定再現性を向上させることができた。

#### 4、図面の簡単な説明

第1図は本発明の一実施例であるバイオセンサの分解斜視図、第2図はその縦断面図、第3図、第4図はバイオセンサの応答特性図、第5図は従来のバイオセンサの縦断面図である。

を示す。第4図Dは、同様の操作をマイクロ波放電プラズマ処理を施さずに作製したグルコースセンサについて行なったものである。マイクロ波放電プラズマ処理を施したものでは、そうでないものに比べて明らかに短時間で濡れている。

以上のように、あらかじめ電極系の表面にマイクロ波放電プラズマ処理を施すことによって、電極系上に試料液を確実にかつ迅速に導くことが可能となった。

電極系を形成する方法としてのスクリーン印刷は、均一な特性を有するディスプレイタイプのバイオセンサを安価に製造することができ、特に、価格が安く、しかも安定した電極材料であるカーボンを用いて電極を形成するのに好都合な方法である。

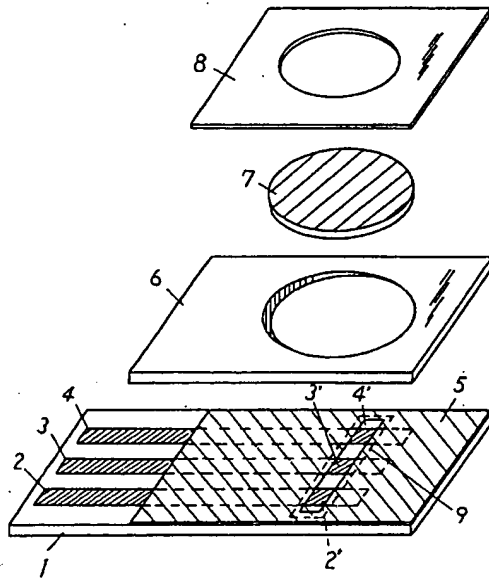
本発明のバイオセンサにおける一体化の方法としては、実施例に示した枠体、カバーなどの形や組み合わせに限定されるものではない。また、用いる多孔体としては、ナイロン不織以外に、セルローズ、レーヨン、セラミック、ポリカーボネー

1……基板、2……対極、3……測定極、4……参照極、5……絶縁層、6……保持枠、7……多孔体、8……カバー、9……マイクロ波放電プラズマ処理の施された部分。

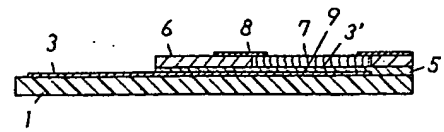
代理人の氏名 弁理士 中 尾 敏 男 ほか1名

- 1 - 絶縁性の基板  
 2, 2' - 対 極  
 3, 3' - 測定極  
 4, 4' - 参照極  
 5 - 絶縁層  
 6 - 保持枠  
 7 - 多孔体  
 8 - カバー  
 9 - マイクロ演放電プラズマ処理の  
 施された部分

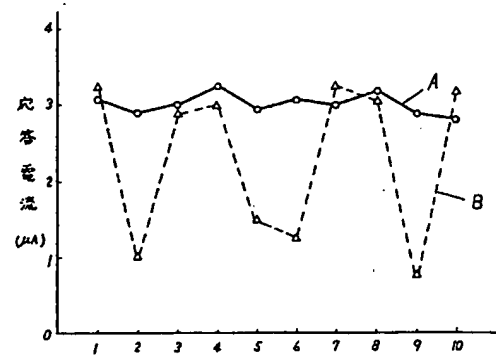
第 1 図



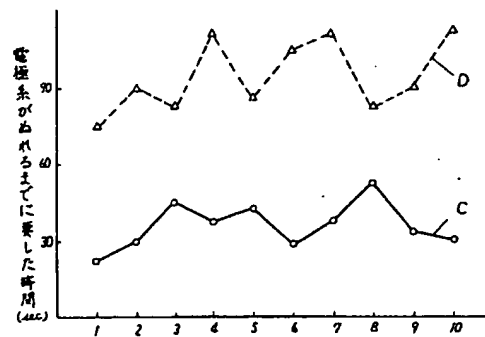
第 2 図



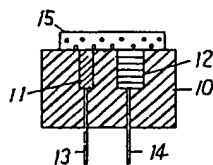
第 3 図



第 4 図



第 5 図



- 10 - 絶縁性基板  
 11 - 測定極  
 12 - 対 極  
 13, 14 - リード  
 15 - 多孔体